2.11

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2001年3月1日(01.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号

(51) 国際特許分類7:

WO 01/14430 A1

之 (IMANISHI, Hirovuki) [JP/JP]. 平賀義之 (HI-

RAGA, Yoshiyuki) [JP/JP]. 浪松正幸 (NAMIMATSU, Masayuki) [JP/JP]. 小松 聡 (KOMATSU, Satoshi)

[JP/JP]; 〒566-8585 大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダ イキン工業株式会社 淀川製作所内 Osaka (JP).

540-0001 大阪府大阪市中央区城見1丁目3番7号 IMP

C08F 6/10, 8/50

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/05674

(22) 国際出願日:

2000年8月24日 (24.08.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願平11/238250 1999年8月25日(25.08.1999) ビル 青山特許事務所 Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): CN, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

(74) 代理人: 青山 葆, 外(AOYAMA, Tamotsu et al.); 〒

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ダイキン 工業株式会社 (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]: 〒530-8323 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅 田センタービル Osaka (JP).

添付公開書類:

国際調査報告書

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 今西博

2文字コード及び他の略語については、 定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: METHOD FOR STABILIZING FLUOROCOPOLYMERS

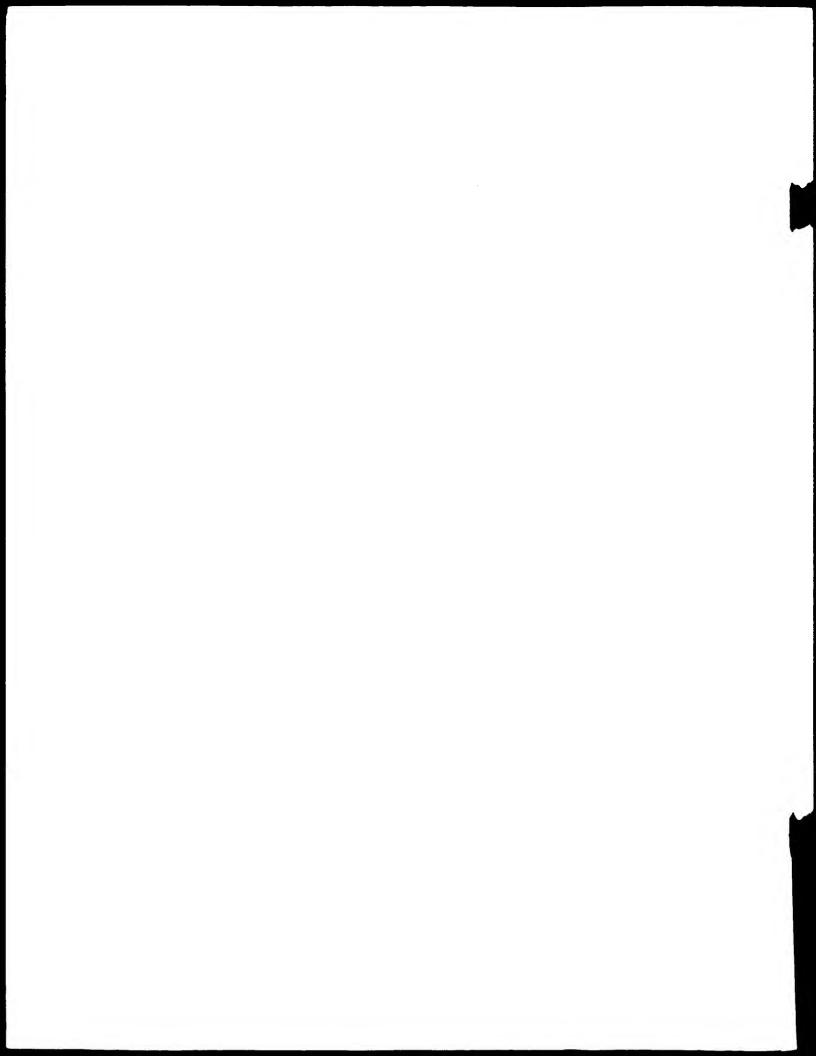
(54) 発明の名称: 含フッ素共重合体の安定化方法

(57) Abstract: A method which comprises melting a melt-processable fluorocopolymer under heating and reheating the fluorocopolymer in a closed vessel in a nonstationary state at a temperature of, e.g., 130°C to the melting point of the fluorocopolymer to thereby decrease the volatile content thereof to 30 % of the initial one or below. This method makes it possible without using large equipment to decrease efficiently the volatile content of a melt-processable fluorocopolymer once molten while avoiding the contamination of the fluorocopolymer with foreign substances.

(57) 要約:

溶融加工可能な含フッ素共重合体を加熱溶融した後、閉鎖容器内で含フッ素共 重合体を非静止状態で、例えば130℃から含フッ素共重合体の融点までの範囲 の温度において再加熱することにより、含フッ素共重合体の揮発分含量を初期揮 発分含量の30%以下に減少させる。これにより、異物の混入を避けながら、大 型の装置を使用しなくても、一旦加熱溶融された溶融加工可能な含フッ素共重合 体の揮発分含量を効率よく低減できる。

WO 01/14430 A1



特 許 協 力 条 約

PCT

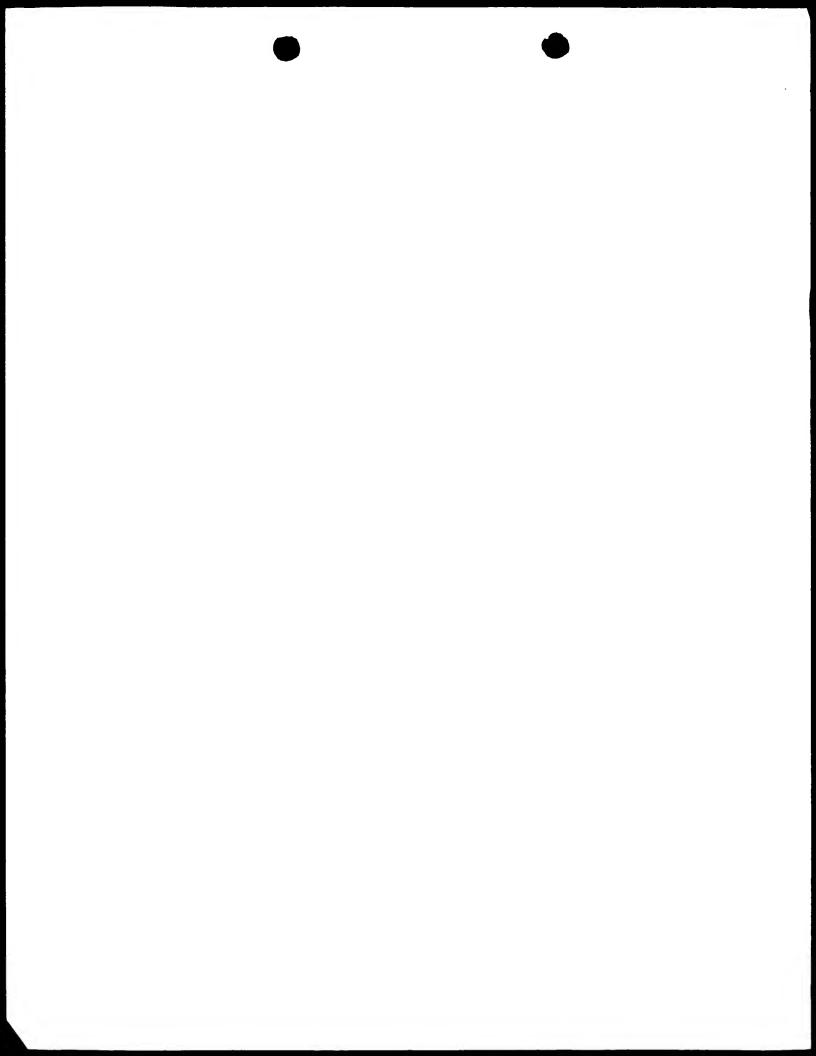
国際予備審査報告

REC'D 2 2 JUN 2001

(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

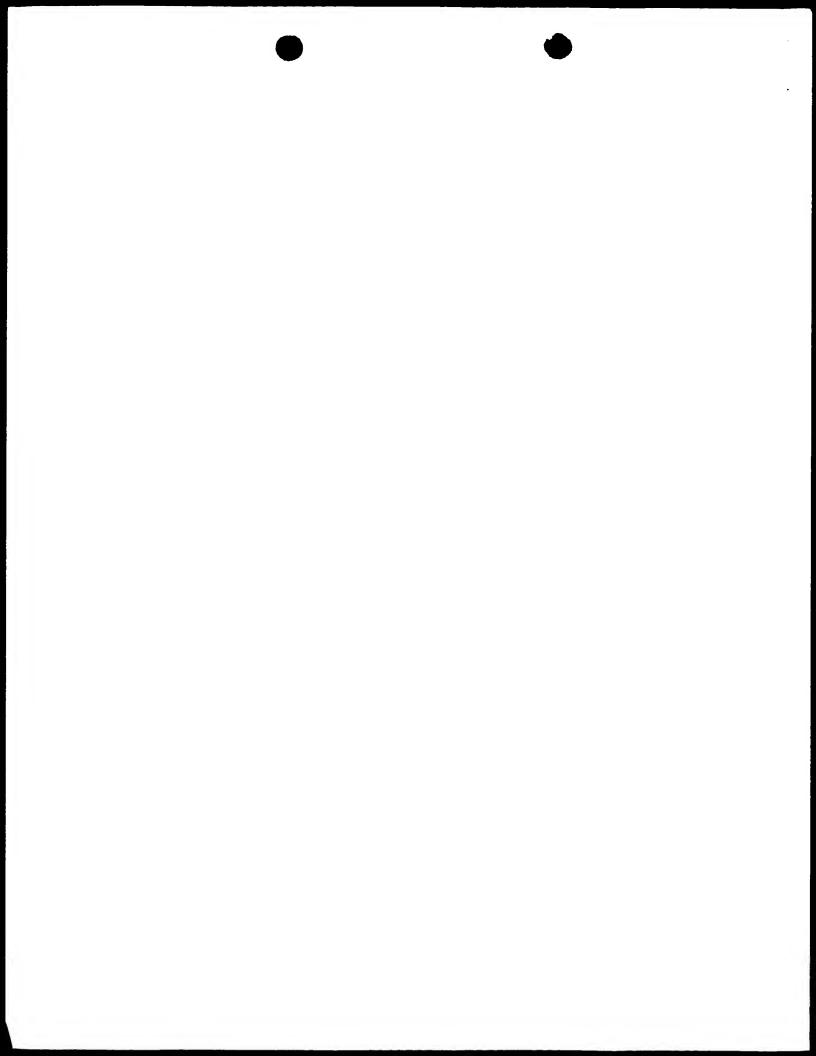
出願人 の書類	、又は代理人 類記号 661942 	今後の手続きについては、国際予備審査報告の IPEA/416	
	出願番号 「/JP00/05674	国際出願日 (日.月.年) 24.08.00 優 久 (日.	日 25.08.99
国際名	特許分類(IPC) Int. Cl ⁷	C08F6/10, C08F8/50	
出願人	(氏名又は名称) ダイキン工業株	式会社 ————————————————————————————————————	
1.	国際予備審査機関が作成したこの	国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT3	36条)の規定に従い送付する。
2.	この国際予備審査報告は、この表	紙を含めて全部で3 ページから	っなる。
	□ この国際予備審査報告には、 査機関に対してした訂正を含 (PCT規則70.16及びPC) この附属書類は、全部で		された及び/又はこの国際予備審 にている。
3.	この国際予備審査報告は、次の内	容を含む。	
	I X 国際予備審査報告の基礎	*	
	II 優先権		
	Ⅲ	8上の利用可能性についての国際予備審査報告の	不作成
	Ⅳ □ 発明の単一性の欠如		
	V X PCT35条(2)に規定 の文献及び説明	する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性につ	ついての見解、それを裏付けるため
	VI		
	VII 国際出願の不備		
	VII 国際出願に対する意見		
1			

国際予備審査の請求書を受理した日 16.03.01	国際予備審査報告を作成した日 06.06.01				
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP)	特許庁審査官(権限のある職員)	4	J 8215		
郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	佐藤 邦彦 印 電話番号 03-3581-1101 F	内線	6827		



国際予備審査報告

I. 国際予備審查	・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・					
1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。 (法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。 PCT規則70.16,70.17)						
X 出願時の国	国際出願書類					
□ 明細書 明細書 明細書	第 第 	ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 付の書簡と共に提出されたもの			
請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲	第	項、 項、 項、	出願時に提出されたもの PCT19条の規定に基づき補正されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの			
請求の範囲	第	項、	一			
図面 図面 図面	第 第 	ページ/図、 ページ/図、 ページ/図、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 付の書簡と共に提出されたもの			
明細書の副	已列表の部分 第 已列表の部分 第 已列表の部分 第	ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 付の書簡と共に提出されたもの			
2. 上記の出願書	ト類の言語は、下記に示す場合	を除くほか、こ	の国際出願の言語である。			
上記の書類に	は、下記の言語である	語であ	ప 。			
□ РСТ	査のために提出されたPCT規 規則48.3(b)にいう国際公開の 備審査のために提出されたP(言語				
3. この国際出願	頁は、ヌクレオチド又はアミノ	酸配列を含んで	おり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。			
□ この国際出願に含まれる書面による配列表 □ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 □ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表 □ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 □ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった □ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。						
明細書	下記の書類が削除された。 第 囲 第 図面の第	項	ジ/図			
れるので、	P備審査報告は、補充欄に示し	たように、補正 として作成した	が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認めら。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上 告に添付する。)			



国際予備審査報告

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性につ 文献及び説明	ついての法第12条 (PCT35条(2)) に定める見解、それを裏付に	ナる
1. 見解		
新規性(N)	http://www.delph	有無
進歩性(IS)		有無
産業上の利用可能性 (IA)		有無
2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)		
文献1:EP, 764668, A 26.03.1997(2 & US, 601111 & JP, 9-873	(Dupont-Mitsui Fluorochemicals Co., Ltd.)、26.03.97)、特許請求の範囲 13,A 34,A	
文献2:CA, 1248292, A 1.1989(03.05 & JP, 60-240	A(E. I. Du Pont De Nemours & Co.)、03. 1.89)、特許請求の範囲 0713,A	0
文献3: JP, 8-239420, 96 (17.09.96) (ファミリーなし)	, A(三菱瓦斯化学株式会社)、17.9月.1)、特許請求の範囲	9
文献4:US, 4578455, 4 86 (25.03.86) & EP, 12044 & JP, 59-20	7, A	9
も開示されておらず、新規性を有っまた、請求の範囲1−8は、国際 文献に対しても進歩性を有する。特に 請求の範囲1の「閉鎖容器	際調査報告に記載されている又献I-4のいすれ 器内で含フッ素共重合体を非静止状態で再加熱す されておらず、それにより「異物の混入を避けな	のる



明 細 書 含フッ素共重合体の安定化方法

技術分野

5

10

15

20

25

本発明は、含フッ素共重合体の安定化方法に関し、更に詳しくは溶融加工可能な含フッ素共重合体の熱安定性を改善する方法に関する。

背景技術

例えば、テトラフルオロエチレンとヘキサフルオロプロピレンとの乳化共重合体から、溶融加工により最終製品を製造すると、最終製品中に揮発性物質による気泡または空隙を生じることがある。この揮発性物質は、熱および/または剪断力に対し不安定なポリマー末端およびポリマー主鎖に起因して発生する。また、溶融加工時に不安定な部位を安定化した場合であっても、加工されたポリマー中に揮発物質が残留し、上記同様、最終製品に加工すると気泡および空隙を生じることがある。

特開昭56-44883号公報は、溶融加工を行った後、開放条件下で、具体的には電気炉中で、テトラフルオロエチレンーへキサフルオロプロピレン共重合体を皿または網上に静置して加熱することにより、共重合体の揮発分含量を初期揮発分含量の70%以下に減少する方法を開示している。しかし、開放条件下における処理では、加熱操作の過程において外部からの異物混入は避け難い。また、静置加熱することで揮発分含量は減少できるが、共重合体の充填厚みを厚くすると、揮発分の拡散の影響を受けて処理時間が長くなる上に充填層内での処理が不均一になり、充填厚みを薄くする場合には大きい面積の皿または網が必要となり、その結果大型の装置が必要となる。

発明の開示

本発明の目的は、異物の混入を避けながら、大型の装置を使用しなくても、一旦加熱溶融された溶融加工可能な含フッ素共重合体の揮発分含量を効率よく低減できる方法を提供することである。

本発明によれば、上記目的は、溶融加工可能な含フッ素共重合体を加熱溶融した後、閉鎖容器内で含フッ素共重合体を非静止状態で再加熱することにより、含

10

15

25

フッ素共重合体の揮発分含量を初期揮発分含量の30%以下に減少させる、含フッ素共重合の安定化方法により達成される。

なお、本明細書における「揮発分含量」は、乾燥した共重合体を約10mmH g絶対圧の下に380℃で30分間加熱した時に失われる共重合体の重量の、加 熱前の乾燥共重合体重量に対する割合(%)によって表わされる。

本発明の方法の対象となる溶融加工可能な含フッ素共重合体は、従来既知の溶融加工可能な含フッ素共重合体のいずれでもよく、例えば、テトラフルオロエチレン(TFE)、ヘキサフルオロプロピレン(HFP)、パーフルオロアルキルビニルエーテル、エチレン(E)およびビニリデンフロライド(VdF)からなる群から選択される少なくとも2種のモノマーからなる共重合体、またはビニリデンフロライド単独重合体などが挙げられる。とりわけ、HFP含量が8~25重量%でありかつパーフルオロアルキルビニルエーテル含量が0~5重量%であるTFE-HFP-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体が好ましく例示できる。

ここでパーフルオロアルキルビニルエーテルは、好ましくは式:

 $CF_2 = CFO(CF_2)_mF$

(式中、mは1~6の数である。)

で表わされるビニルエーテル、または式:

 $CF_2 = CF[O-CF_2CF(CF_3)]_pOC_3F_7$

20 (式中、nは1~4の数である。)

で表わされるビニルエーテルである。

好ましくは、溶融加工可能な含フッ素共重合体は、上記モノマーから乳化重合または懸濁重合で製造されたものである。更に、これらの重合体がテトラフルオロエチレンーへキサフルオロプロピレン共重合体(FEP)、TFEーパーフルオロビニルエーテル共重合体(PFA)、またはTFEーHFPーパーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体である場合には、共重合体は、好ましくは372℃において0.1~100kPa・sの溶融粘度を有する。

本発明の方法は、好ましくは、含フッ素共重合体を360~430℃の温度条件で10分以下加熱し溶融した後、さらに130℃から含フッ素共重合体の融点

10

15

20

25

の範囲、好ましくは150℃から含フッ素共重合体の融点の範囲で再加熱を行う 2段階の処理工程を含んでいる。

1段階目の加熱は、押出機を用いた加熱であっても、異物の混入を防止する対策の施された電気炉中において皿上に静置して行う加熱であっても良い。

1 段階目の処理温度が360℃より低いと、共重合体の末端および主鎖の不安 定成分が十分に安定化されず、2段階目の再加熱処理を行い、揮発分含量を低減 したとしても、最終製品に溶融加工する時に発泡を生じることがある。

本発明の方法では、2段階目の加熱により、1段階目で溶融し、所望形状に加工した含フッ素共重合体の形状を維持しつつ溶融させることなく揮発分含量を減少させることが可能である。

2段階目の加熱は、130℃ないし含フッ素共重合体の融点の温度範囲で、

 $1 \circ g t = 6. \quad 12 - 0. \quad 0119 T$

(ここで、tは処理時間(hr)、Tは処理温度(絶対温度K)である。)で表される関係式に従って行い、揮発分を減少させる。

この際の加熱温度が130℃未満であると、処理時間がかかるだけでなく、揮発分含量を十分に減少させることができない。

2段階目の加熱は、連続で行う場合は、装置内の空塔速度が0.8m/s以下、好ましくは $0.05\sim0.5m/s$ である熱風を加熱源として、または上記条件の熱風と装置壁からの伝熱との併用によって行う。

2 段階目の加熱処理を連続的に行う場合には、装置内の滞留時間を均一にし、 加えて排出時の物性を均質化することが望ましい。

熱風の空塔速度が0.8 m/s を越えると、共重合体の仕込および排出を連続的に行う場合には、熱風の風量、圧力などの影響を受けて、共重合体が浮遊化し、混合されるので、均一な揮発成分を含む共重合体が得られるように操作を行うのが困難となる。

本発明の方法で用いる装置は、開放式ではなく、処理時には密閉できる装置であり、形状は縦型の塔でも横型の装置でも良い。

本明細書において「閉鎖容器」とは、連続式の場合であっても、回分式であっても、加熱処理中に容器内部の雰囲気が外部雰囲気と直接的に接触せず、共重合

10

15

20

25

体の出入りする部分を除いてはフィルター等によって異物粒子数や異物の最大径を管理された空気のみを装置内に導入できる装置を意味し、内部の雰囲気は必ず しも完全に外部雰囲気(大気)から遮断される必要はない。

本発明中において「非静止状態」とは、皿のような容器に共重合体を静置して加熱する場合を排除する意味である。例えば、連続式の場合は、共重合体の粒子が容器内で充填層状をなしており、仕込み速度に応じて装置内を連続的に移動し最終的に装置外に排出される移動層の状態を表わし、回分式の場合は、攪拌機等により共重合体を強制的に浮遊化、流動化した状態を表わす。

再加熱に用いる装置は、回分式でも連続式でも良いが、共重合体を連続的に仕込み、排出を行うことにより、温度の分布および揮発分の減少率の分布が比較的狭い範囲に制御され、安定して発泡の生じない含フッ素共重合体が製造できる。

縦型の連続処理装置の場合は、含フッ素共重合体を上部から仕込み、重力によって上部から下部に移動させつつ加熱し、下部から排出することによって流動させる移動層形式の装置が有利である。また横型の回分式装置の場合は、熱風式乾燥機や伝導伝熱式乾燥機のような攪拌機によって含フッ素共重合体を流動化させることが効率的である。

また、閉鎖容器内で強制的に熱風を送り込み加熱処理を行うことによって外部からの異物の混入を防止することができる。連続で処理を行う縦型の移動層形式装置の場合は、例えば仕込みおよび排出部にロータリーバルブを設置し、熱風により装置内の微加圧を維持することによって異物の混入を防止できる。

さらに、再加熱装置に引き続き、含フッ素共重合体を連続的に冷却する装置を 設置し、最終的に充填出荷可能な温度以下に具体的には60℃以下に冷却するこ とが可能である。

実施例

以下、実施例を示し、本発明を具体的に説明する。

ここで、「揮発分含量」は、乾燥した共重合体を約10mmHg絶対圧の下に380℃で30分間加熱した時に失われる共重合体の重量の、加熱前の共重合体重量に対する割合(%)によって表わされる。

また、発泡試験は、厚さ2.0mmの成型シートを300℃で10分間加熱し

て溶融させた時に、目視によりシート内に気泡の発生が確認されれば「発泡あり」、確認されなけれ「発泡なし」と評価する。

異物の有無は、370℃において約3mmの厚みを持ったφ120mmの円盤 状シートを成型し、そのシートに含まれる異物の有無を目視で評価する。

実施例 1

5

10

15

20

25

懸濁重合で調製したTFE-HFP-パーフルオロプロピルビニルエーテル含フッ素共重合体を用いた。

この共重合体の溶融粘度は、2.3 k P a · s であり、押出し前の揮発分含量は0.88重量%、ヘキサフルオロプロピレン含量が11.5重量%、パーフルオロプロピルビニルエーテル含量が0.9重量%であった。

この共重合体を洗浄、乾燥した後、370 $\mathbb C$ の温度、2 分間の滞留時間という条件で、内径 95 mm、L/D30 のシリンダーを有する単軸押出機で押出加工した。押出された含フッ素共重合体はペレタイザーでペレット化した後、連続的に、200 $\mathbb C$ $\mathbb C$ 5 時間の滞留時間となるように設計された移動層に仕込み、再加熱した。熱風はフィルタ(3μ m粒子を 99.97 %カット)を通して異物を除去した後、0.35 m/s の空塔速度で連続的に加熱源として再加熱装置に供給された。

再加熱装置の高さは3650mm、内径は850mmであり、装置下部にコーン状パンチングメタルを設置して、熱風仕込口を移動層から分離し、ペレットの排出を容易にした。

再加熱装置から連続的に排出されたペレットは、引き続き冷却装置に仕込み、60℃以下に冷却し、連続的に回収した。

冷却装置から回収されたペレットの揮発分含量は0.23重量%であり、これは初期揮発分含量(0.88重量%)の26%であった。発泡試験では発泡を認められず、異物も含まれていなかった。

比較例1

実施例1において押出し加工後再加熱前に採取したペレットの揮発分含量は0. 75重量%であり、発泡試験では発泡が生じた。

比較例2

実施例1において押出し加工後再加熱前に採取したペレットを電気炉中の皿上に約20mmの厚みで静置し、200℃で5時間再加熱を行った。再加熱後の揮発分含量は0.31重量%であって、初期揮発分含量の35%まで低下し、発泡試験において発泡も起こさなかった。しかし、電気炉中での再加熱処理段階で異物が外部より混入しており、目視により黒色の異物が複数個確認された。

上記の結果を表1にまとめて示す。

表 1

5

10

15

20

25

	揮発分含量	異物の	発泡試験
	[初期揮発分含量に対する割合]	有無	
実施例1	0.23重量%[26%]	無し	発泡なし
比較例1	0.75重量%[85%]	無し	発泡あり
比較例2	0.31重量%[35%]	有り	発泡なし

実施例2

実施例1で仕様したのと同じ含フッ素共重合体を、375 $^{\circ}$ の温度、2分間の滞留時間という条件で、内径95 $^{\circ}$ mm、L/Dが30のシリンダーを有する単軸押出機で押出加工した。押出加工したペレットが外部と直接接触しないように、フィルタ(3 $^{\circ}$ m粒子を99.97 $^{\circ}$ カット)を通した空気によって移送し、235 $^{\circ}$ で1.5時間の滞留時間をとなるように設計された移動層に連続的に仕込み、実施例1と同様に熱風によって再加熱した。

押出機から排出されたペレットの揮発分含量は0.14重量%であり、これは初期揮発分含量の16%であった。発泡試験では発泡は認められなかった。

比較例3

実施例2において押出し加工後再加熱前に採取したペレットの揮発分含量は0. 68重量%であり、発泡試験では発泡が生じた。

比較例4

実施例2において押出し加工後再加熱前に採取したペレットを電気炉中の皿上に約150mmの厚みで静置し、235℃で1.5時間再加熱を行った。

堆積したペレットの上層部 (ペレット堆積層の表面から深さ25mmまでの部分) の揮発分含量は0.18重量%であり、発泡試験でも発泡しなかった。

一方、皿に近い下層部(皿の表面から0~30mmの部分)の揮発分含量は0.

41重量%であり、初期揮発分含量の47%までしか低下しておらず、発泡試験では発泡が認められた。これは、皿上に充填したペレット層が厚く、揮発分の拡散の影響が無視できなくなり、皿の下部では十分に揮発分が低減できなかったためである。また、比較例2と同様に、電気炉中での再加熱処理段階で異物が外部より混入しており、複数の異物が目視により確認された。異物は上層部だけでなく、下層部でも確認された。

実施例2および比較例3-4の結果を表2にまとめて示す。

表 2

5

15

	揮発分含量	異物の	発泡試験
	[初期揮発分含量に対する割合]	有無	
実施例 2	0.14重量%[16%]	無し	発泡なし
比較例3	0.68重量%[77%]	無し	発泡あり
比較例4(上層部)	0.19重量%[22%]	有り	発泡なし
比較例4(下層部)	0.41重量% [47%]	有り	発泡あり

10 比較例 5

10

15

20

請求の範囲

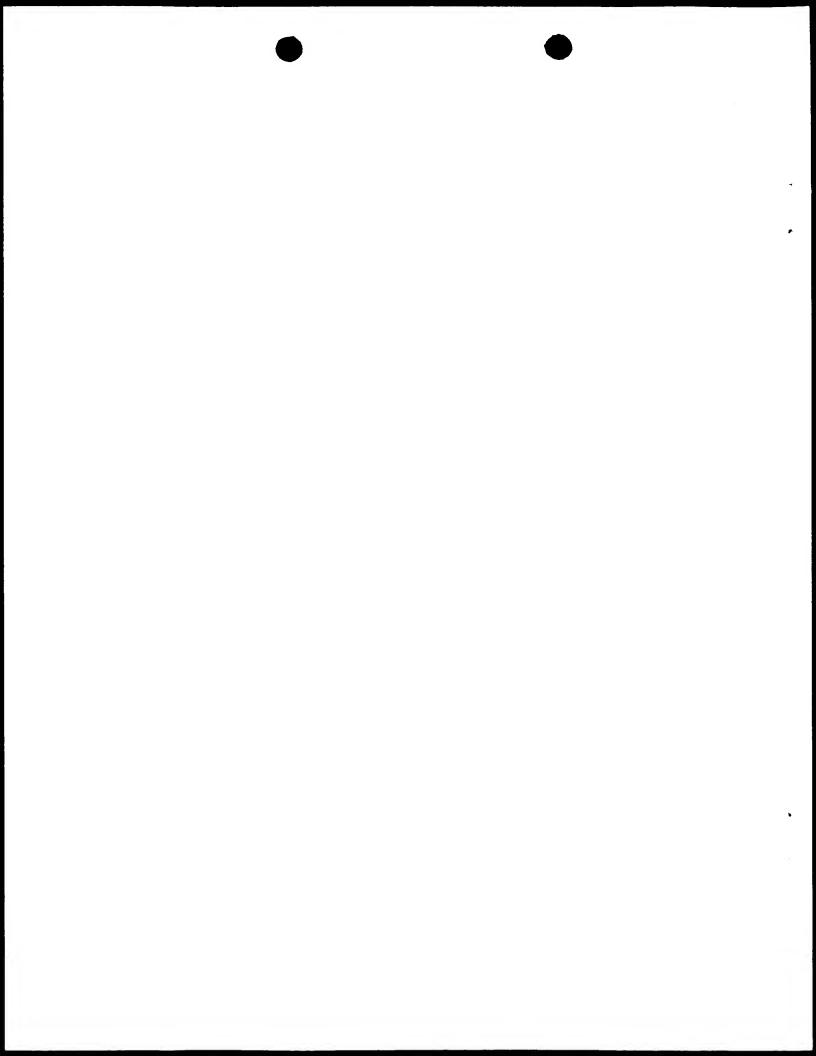
- 1. 溶融加工可能な含フッ素共重合体を加熱溶融した後、閉鎖容器内で含フッ 素共重合体を非静止状態で再加熱することにより、含フッ素共重合体の揮発分含 量を初期揮発分含量の30%以下に減少させることを特徴とする、含フッ素共重 合の安定化方法。
- 2. 再加熱温度は、130℃から前記共重合体の融点までの範囲の温度である 請求項1に記載の含フッ素共重合の安定化方法。
- 3. 再加熱処理を、閉鎖容器内への異物の混入を抑制しながら行う請求項1または2に記載の含フッ素共重合の安定化方法。
- 4. 前記含フッ素共重合体は、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、パーフルオロアルキルビニルエーテル、エチレンおよびビニリデンフルオライドからなる群から選択される少なくとも2種のモノマーの共重合体である請求項1~3のいずれかに記載の含フッ素共重合の安定化方法。
- 5. 前記含フッ素共重合体は、ヘキサフルオロプロピレン含量が8~25重量%でありかつパーフルオロアルキルビニルエーテル含量が0~5重量%であるテトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレンーパーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体である請求項4に記載の含フッ素共重合の安定化方法。
- 6. 再加熱に付す含フッ素共重合体は、予め360~430℃の範囲の温度で 10分を越えない時間加熱して溶融された共重合体である請求項1~5のいずれ かに記載の含フッ素共重合の安定化方法。
- 7. 含フッ素共重合体は、372℃において0. 1~100kPa・sの溶融 粘度を有する請求項1~6のいずれかに記載の含フッ素共重合の安定化方法。
- 8. 閉鎖容器内で行う再加熱処理を、連続的に行う請求項1~7のいずれかに 記載の含フッ素共重合の安定化方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05674

	FICATION OF SUBJECT MATTER C1 ⁷ C08F6/10, C08F8/50					
	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC					
B. FIELDS	SEARCHED					
Int.	Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ C08F6/10, C08F8/50					
	on searched other than minimum documentation to the e					
	ata base consulted during the international search (name	of data base and, where practicable, sear	en terms used)			
<u> </u>	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		D. 1			
Category*	Citation of document, with indication, where app		Relevant to claim No.			
A	EP, 764668, A (Dupont-Mitsui Fluo 26 March, 1997 (26.03.97), Claims & US, 6011113, A & JP, 9-873		1-8			
A	CA, 1248292, A (E. I. Du Pont Do 03 January, 1989 (03.01.89), Claims & JP, 60-240713, A	1-8				
A	JP, 8-239420, A (Mitsubishi Gas C 17 September, 1996 (17.09.96), Claims (Family: none)	hemical Company, Inc.),	1-8			
A	US, 4578455, A (BASF Aktiengese 25 March, 1986 (25.03.86), Claims & EP, 120447, A & JP, 59-20	1-8				
- Fueth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.	<u> </u>			
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published aft priority date and not in confi understand the principle or to document of particular relevance "X" document of particular relevance "Y" document of particular relevance "Y" document of particular relevance "O" document published prior to the international filing date but later than the priority date and not in confi understand the priority date and not in confi understand the priority date and not in configured to another cannot lead to priority date and not in configured to another stand the priority date and not in configured to another stand the priority date and not in configured to another stand the priority date and not in configured to another stand the priority date and not in configured to another stand the priority date and not in configured to another stand the priority date and not in configured to another stand the priority decument of particular relevance "X" document of particular relevance "Y" document of p			he application but cited to lerlying the invention cannot be claimed invention cannot be tred to involve an inventive claimed invention cannot be p when the document is he documents, such in skilled in the art family			
21	actual completion of the international search November, 2000 (21.11.00)	Date of mailing of the international sea 28 November, 2000 (28.11.00)			
Name and Jap	mailing address of the ISA/ canese Patent Office	Authorized officer				
Facsimile :	No.	Telephone No.				



国際調査報告

r						
	A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))					
		Int. Cl ⁷ C08F6/10, C08F	8/50			
ľ	 B. 調査を行					
		最小限資料(国際特許分類(IPC))				
		Int. Cl ⁷ C08F6/10, C08F	8 / 5 0			
		1111. 61 6081 0/10, 6081	8/30			
-	具业图数料以及					
	取小限資料以外	トの資料で調査を行った分野に含まれるもの				
ĺ						
ŀ						
	国際調査で使用	用した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)			
-	C. 関連する	てし親いこれ て 六本				
ł	引用文献の	ると認められる文献 		関連する		
	カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	ときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号		
	A	EP, 764668, A (Dupont-Mi	tsui Fluorochemicals Co., L	1 – 8		
		td.), 26. 03. 1997 (26	. 03. 97) 、特許請求の			
		範囲				
		& US, 6011113, A				
1		& JP, 9-87334, A				
١	A	CA, 1248292, A (E. I. D	Dent De Nameure (C-)	1 0		
1	A	03. 01. 1989 (03. 01.		1 – 8		
	ı	& JP, 60-240713, A				
		a ji, 00 240110, 1	•			
	図 C欄の続き	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。		
	* 引用文献の		の日の後に公表された文献			
		車のある文献ではなく、一般的技術水準を示す	「T」国際出願日又は優先日後に公表さ	された文献であって		
	もの (5) (同歌) (8)	Cottours to the cottours of th	出願と矛盾するものではなく、多	発明の原理又は理論		
			の理解のために引用するもの「X」特に関連のある文献であって、	4該文献の五で祭明		
1.1			の新規性又は進歩性がないと考え			
			「Y」特に関連のある文献であって、			
	文献(理由を付す)					
i	「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 「&」同一パテントファミリー文献					
国際調査を完了した日 21.11.00 国際調査報告の発送日 28.1100				1.00		
	国际興重を元	21. 11. 00	国际网里和日初光运口 20.1	100		
	国際調査機関の	の名称及びあて先	特許庁審査官(権限のある職員)	4 J 8 2 1 5		
	日本[国特許庁 (ISA/JP)	佐藤 邦彦 日	j		
		郵便番号100-8915	المناب المالية			
	米水1	都千代田区霞が関三丁目4番3号	電話番号 03-3581-1101	PMR 6827		

国際調査報告

C (続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
А	JP, 8-239420, A (三菱瓦斯化学株式会社)、17.9月.1996(17.09.96)、特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-8
A	US, 4578455, A (BASF Aktiengesellschaft)、Mar. 25.1986 (25.03.86)、特許請求の範囲 & EP, 120447, A & JP, 59-202205, A	1 - 8

CPCH0260387P

Patent Office of the People's Republic of China

Address: Receiving Section of the Chinese Patent Office, No. 6 Tucheng Road West, Haidian District, Beijing. Postal code: 100088

Applicant	DAIKIN INDUSTRIES, LTD.		Examiner	Date of Issue
Agent	China Patent Aç	gent (H.K.) Ltd.		January 31, 2003
Patent Application No.	00812012.9	THE REPORT OF THE PROPERTY OF	Exam Dept.	
Title of MET	THOD FOR STA	BILIZING FLUOROCOPOLYN	MERS	

First Office Action

(PCT application entering into the national phase)

1. 🗹 Under the provision of Art. 35, para. 1 of the Patent Law, the examiner has made an examination as to substance of the captioned patent application for invention upon the request for substantive examination filed by the applicant on Jul 18, 2002	
☐ Under the provision of Art. 35, para. 2 of the Patent Law, the Chinese Patent Office has decided to conduct an examination of the captioned patent application for invention on its own initiative.	
2. If the applicant requests that the filing dateAug 25, 1999 at theJP Patent Office be taken as the priority date of the present application, the filing date at the Patent Office be taken as the priority date of the present application, the filing date at the Patent Office be taken as the priority date of the present application.	
 3. ☐ The following amended documents submitted by the applicant cannot be accepted for failure to conform with Art. 33 of the Patent Law: ☐ the Chinese version of the annex to the international preliminary examination report. ☐ the Chinese version of the amended documents submitted according to the provision of Rule 19 of the Patent Cooperation Treaty. 	

1

9016

of the Patent Cooperat	nts submitted according to the provision of Rule 51 of the
See the text portion of t	his Office Action for detailed reasons why the amendment
international application Examination is conduct page of the estimational a page of the desinternational preliminary estimates according to the provision page of the desinternational provision page of the design	ted on the following document(s): description, based on the Chinese version of the initially- pplication documents; scription, based on the Chinese version of the annex to the
international application claim(s), base submitted according to claim(s), base preliminary examination claim(s), base provision of Rule 28 or Ruclaim(s), base provision of Rule 51 of the	ed on the Chinese version of the amended documents the provision of Rule 19 of the Patent Cooperation Treaty; and on the Chinese version of the annex to the international report; and on the amended documents submitted according to the le 41 of the Patent Cooperation Treaty; and on the amended documents submitted according to the le Implementing Regulations of the Patent Law.
application documents; Fig(s), based preliminary examination Fig(s), based provision of Rule 28 or Ru	on the Chinese version of the initially-submitted international on the Chinese version of the annex to the international report; on the amended documents submitted according to the alle 41 of the Patent Cooperation Treaty; on the amended documents submitted according to the

provision of Rule 51 of the Implementing Regulations of the Patent Law.

5. The following reference document(s) is/are cited in this Office Action (its/their serial number(s) will continue to be used in the subsequent course of examination):

Serial	Number or Title(s) of Document(s)	Date of Publication (or filing date of interfering application)
1	WO9809784	Mar 12, 1998
2		
3		
4		

6. Concluding comments on the examination:

1 On the description:
☐ What is stated in the application comes within the scope of that no patent right
shall be granted as prescribed in Art. 5 of the Patent Law.
☐ The description is not in conformity with the provision of Art. 26, para. 3 of the
Patent Law.
☑ On the claims:
\square Claim(s) come(s) within the scope of that no patent right shall be granted
as prescribed in Art. 25 of the Patent Law.
\square Claim(s) 1-5, 7 have no novelty as prescribed in Art. 22, para. 2 of the
Patent Law.
\square Claim(s) $__8$ has no inventiveness as prescribed in Art. 22, para. 3 of the
Patent Law.
□ Claim(s) has/have no pratical applicability as prescribed in Art. 22, para.
of the Patent Law.
\square Claim(s) is not in conformity with the provision of Art. 26, para. 4 of the
Patent Law.
□ Claim(s) is/are not in conformity with the provision of Art. 31, para. 1 of the
Patent Law.
$oxed{oxed}$ Claim(s) $\underline{}$ 1, 4, 6-8 are not in conformity with the provisions of Rules 20 to 23 c
the Implementing Regulations.
□ Claim(s) is/are not in conformity with the provision of Art. 9 of the Patent
Law.

☐ Claim(s) is/are not in conformity with the provision of Rule 12, para. 1 of the Implementing Regulations.
See the text portion of this Office Action for detailed analysis of the above concluding comments.
 7. Based on the above concluding comments, the examiner deems that ☐ the applicant should make amendment to the application document(s) according to the requirements put forward in the text portion of this Office Action. ☑ the applicant should expound in his/its observations why the captioned patent application is patentable and make amendment to what is not in conformity with the provisions pointed out in the text portion of this Office Action, otherwise, no patent right shall be granted. ☐ the patent application contains no substantive content(s) for which a patent right may be granted, if the applicant has no sufficient reason(s) to state or his/its stated reason(s) is/are not sufficient, said application will be rejected.
 8. The applicant should note the following items: Under Art. 37 of the Patent Law, the applicant should submit his/its observations within four months from the date of receipt of this Office Action; if, without any justified reason(s), the time limit for making written response is not met, said application shall be deemed to have been withdrawn. The amendment made by the applicant to said application should be in conformity with the provision of Art. 33 of the Patent Law, the amended text should be in duplicate and its form should conform with the related provisions of the Guide to Examination. If no arrangement is made in advance, the applicant and/or the agent shall not come to the Chinese Patent Office to have an interview with the examiner. The observations and/or amended text should be sent to the Receiving Section of the Chinese Patent Office by mall or by personal delivery, if not sent to the Receiving Section by mail or by personal delivery, will have no legal effect.
 9. This Office Action consists of the text portion totalling1 page(s) and of the following attachment(s): 1 copy(copies) of the reference document(s) totalling9 page(s).
Examination Dept. No Examiner

		<i>:</i>

出願人又は代理人

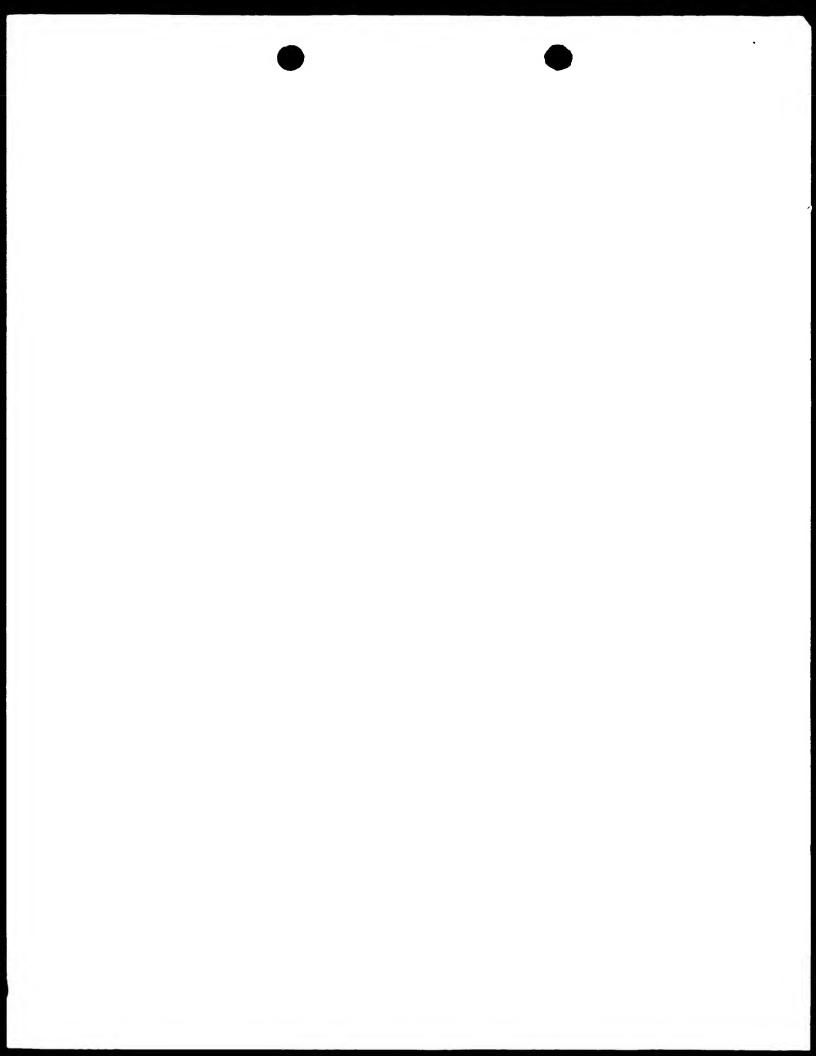
今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)

РСТ

国際調査報告

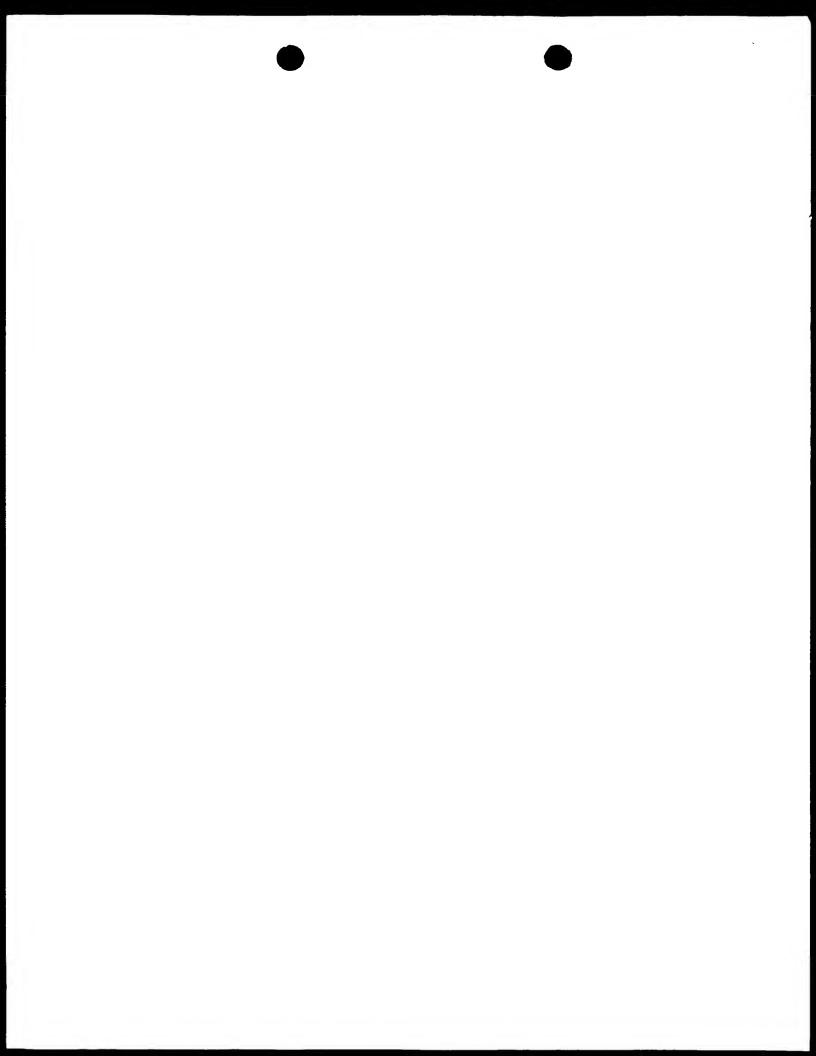
(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

の書類記号 661942).	女び下記5を	を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/05674	国際出願日(日.月.年)	24.08.	0 0	優 先日 (日.月.年)	25.08.99
出願人 (氏名又は名称) ダイキ	ン工業株式会社	t .			
国際調査機関が作成したこの国際調査 この写しは国際事務局にも送付される			°CT18\$	た) の規定に従い	、出願人に送付する。
この国際調査報告は、全部で3	ページであ	ప .			
□ この調査報告に引用された先行打	支術文献の写し	も添付されてレ	いる。	*	
1. 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除く この国際調査機関に提出さ					
b. この国際出願は、ヌクレオチト この国際出願に含まれる書			り、次の酢	2列表に基づき国	国際調査を行った。
この国際出願と共に提出さ					
□□出願後に、この国際調査機					
│ 出願後に、この国際調査機│ │ 出願後に提出した書面によ					る東項を含まない島の陣域
書の提出があった。	- ОВСУ13X 17 - ДД1994		ѫш <i>и</i> я∘лт	アク型四でたん	の事項を占まない自の除处
■ 書面による配列表に記載し 書の提出があった。	た配列とフレキ	シブルディス	クによる配	列表に記録した	配列が同一である旨の陳述
2. 請求の範囲の一部の調査が	『できない (第二	I 欄参照)。			
3. 発明の単一性が欠如してい	ヽる(第Ⅱ欄参照	展) 。			
4. 発明の名称は 🗓 出解	賃人が提出したも	しのを承認する	٥		
□ 次に	ニ示すように国際	祭調査機関が作	成した。		
			·		
5. 要約は 🗓 出願	負人が提出したも	しのを承認する	•		
国際		戈した。 出願人	は、この国	際調査報告の発	l則38.2(b)) の規定により 送の日から1カ月以内にこ
6. 要約書とともに公表される図は、					
第図とする。□ 出願				∑ な	
	「人は図を示さな	ょかった。			
本図]は発明の特徴を	と一層よく表し	ている。		



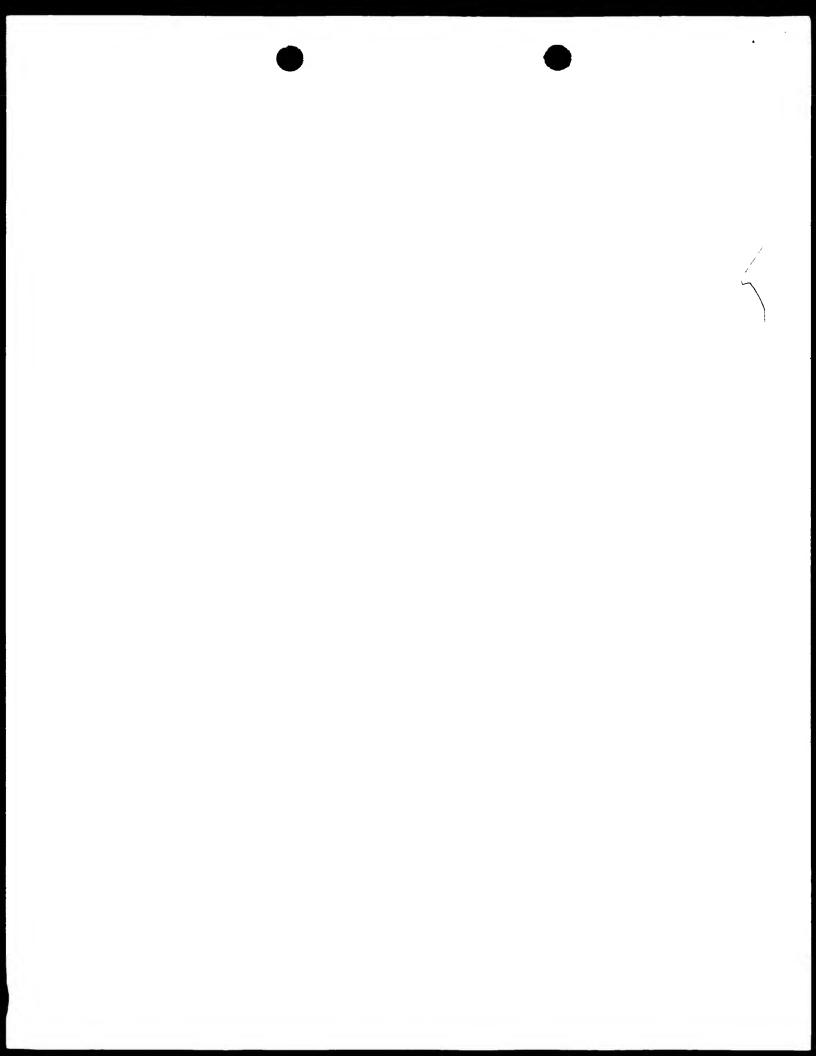


	国際調査報告	国際出願番号 PCT/	/JP00/05674
A. 発明の	属する分野の分類(国際特許分類(IPC))		
	Int. Cl ⁷ C08F6/10, C08F	8/50	
B. 調査を	<u></u> 行った分野		
	最小限資料(国際特許分類(IPC))		
	Int. Cl ⁷ C08F6/10、C08F	8/50	
最小限資料以	外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で使	用した電子データベース(データベースの名称	、調査に使用した用語)	
	ると認められる文献		FRY- L -
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連する	ときは、その関連する箇所の表示 ときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
А	EP, 764668, A (Dupont-Mitd.)、26.03.1997(26 範囲		
	& US, 6011113, A & JP, 9-87334, A		
A	CA, 1248292, A (E. I. I 03. 01. 1989 (03. 01. & JP, 60-240713,	89)、特許請求の範囲	· · ·
図 C欄の続き	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関	曷する別紙を参照。
もの 「E」国際出版 以後にを 「L」優先若し、 で で 「O」口頭に。	のカテゴリー 連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 順日前の出願または特許であるが、国際出願日 公表されたもの 主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 は他の特別な理由を確立するために引用する 理由を付す) よる開示、使用、展示等に言及する文献 順日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の理解のために引用する 「X」特に関連のある文献であ の新規性又は進歩性がな 「Y」特に関連のある文献であ 上の文献との、当業者に よって進歩性がないと考 「&」同一パテントファミリー	に公表された文献であってなく、発明の原理又は理論もののので、当該文献のみで発明のと考えられるものできる。 では、当該文献のみで発明のと考えられるものののでは、当該文献と他のははである。 は、ではいている。 は、ではいる、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、は、
国際調査を完	了した日 21.11.00	国際調査報告の発送日	2 8.11 00
日本国	D名称及びあて先 国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915	特許庁審査官(権限のある職員 佐藤 邦彦	4月8215
	第千代田区霞が関三丁目4番3号	電話番号 03-3581-1	101 内線 6827





	<u> </u>	国际山横番号「CTノ」「FU	
C(続き).	関連すると認められる文献		
引用文献の			関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときに	は、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
A	JP, 8-239420, A (三菱瓦斯化 月. 1996 (17.09.96)、特許 (ファミリーなし)	之学株式会社)、17.9 請求の範囲	1-8
A	US, 4578455, A (BASF Aktieng 5. 1986 (25. 03. 86)、特許 & EP, 120447, A & JP, 59-202205, A		1 - 8



PATENT COOPERATION TRLATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

TOTAL CHE HATE HAT A TOTAL BE

Commissioner US Department of Commerce

United States Patent and Trademark

Office, PCT

2011 South Clark Place Room

CP2/5C24

Arlington, VA 22202

Date of mailing (day month/year) 25 April 2001 (25.04.01)	ETATS-UNIS D'AMERIQUE In its capacity as elected Office
International application No. PCT/JP00/05674	Applicant's or agent's file reference 661942
International filing date (day month year) 24 August 2000 (24.08.00)	Priority date (day month year) 25 August 1999 (25.08.99)
Applicant IMANISHI, Hiroyuki et al	

	IMANISHI, Hiroyuki et al
1.	The designated Office is hereby notified of its election made:
	X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
	16 March 2001 (16.03.01)
	in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:
2.	The election X was was was not
	made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Authorized officer

Kiwa Mpay

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU To:

NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

DAIKIN INDUSTRIES, LTD. et al

AOYAMA, Tamotsu Aoyama & Partners **IMP** Building 3-7, Shiromi 1-chome Chuo-ku, Osaka-shi Osaka 540-0001 JAPON

Date of mailing (day/month/year) 06 November 2000 (06.11.00)	
Applicant's or agent's file reference 661942	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/05674	International filing date (day/month/year) 24 August 2000 (24.08.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99)

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents. 2.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Country or regional Office Date of receipt Priority date Priority application No. of priority document or PCT receiving Office JP 13 Octo 2000 (13.10.00) 25 Augu 1999 (25.08.99) 11/238250

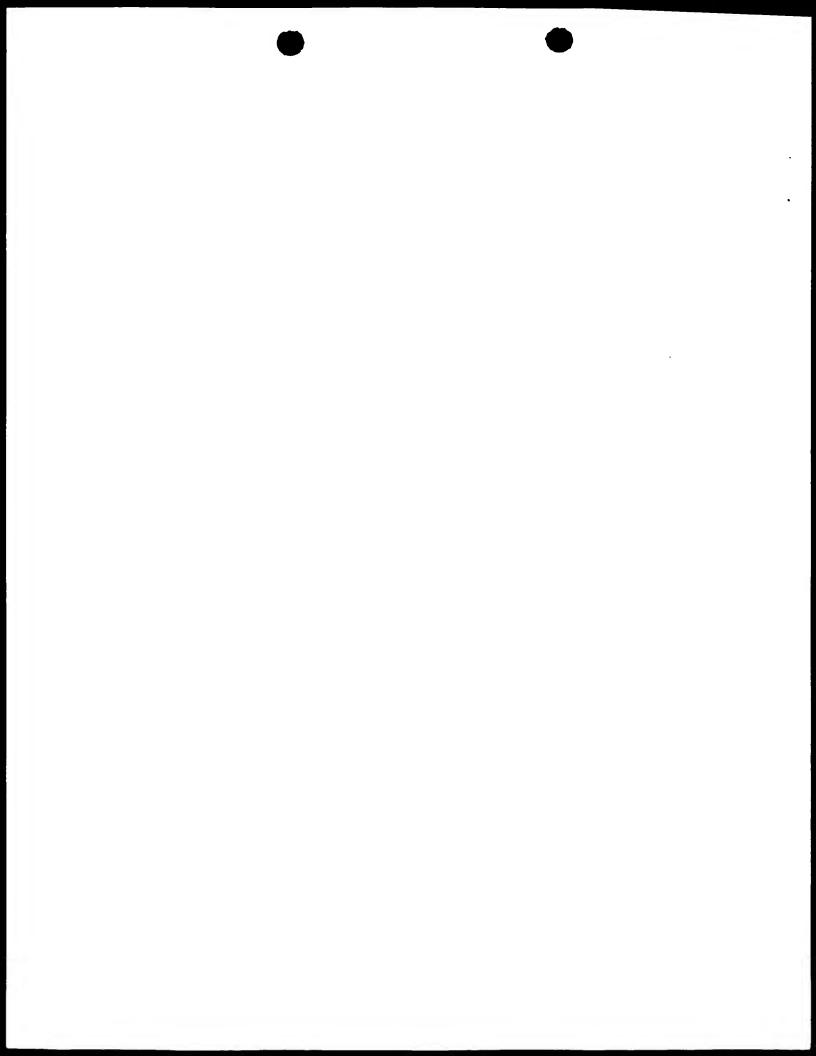
> The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Magda BOUACHA

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Facsimile No. (41-22) 740.14.35



PCT



From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

AOYAMA, Tamotsu Aoyama & Partners IMP Building 3-7, Shiromi 1-chome Chuo-ku, Osaka-shi Osaka 540-0001 JAPON

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

Date of mailing (day/month/year)

01 March 2001 (01.03.01)

Applicant's or agent's file reference

661942

IMPORTANT NOTICE

International application No. PCT/JP00/05674

International filing date (day/month/year) 24 August 2000 (24.08.00)

Priority date (day/month/year)

25 August 1999 (25.08.99)

Applicant

DAIKIN INDUSTRIES, LTD. et al

 Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CN,EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 01 March 2001 (01.03.01) under No. WO 01/14430

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

3855886 外国方式

